

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-253437

(43)Date of publication of application : 01.10.1996

(51)Int.CI.

C07C 39/17

C07C 37/20

C07C 37/86

(21)Application number : 08-032223

(71)Applicant : WEYL GMBH

(22)Date of filing : 20.02.1996

(72)Inventor : BIEDENBACH BRUNO DR  
ORTH WINFRIED  
WEISS WOLFGANG DR

(30)Priority

Priority number : 95 19506055 Priority date : 22.02.1995 Priority country : DE

## (54) PRODUCTION OF FLUORENBISPHENOL

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To minimize the formation of byproducts by isomerizing the byproducts to the subject compound by heating the reaction mixture at a specific temperature after carrying out a condensation reaction of fluorenone with phenol.

**SOLUTION:** Fluorenone is reacted with phenol in a strong acidic medium by using  $\alpha$ -mercaptopropionic acid or mercaptoacetic acid as a catalyst at 55–65° C, and the reacted product is subjected to an isomerization reaction at 75–100° C to provide the objective 9,9-bis(4-hydroxyphenyl)fluoren in the method for producing fluorenbisphenol. After carrying out the after treatment of the reaction mixture and gathering the objective compound, the remaining residue is preferably mixed with the catalyst and the acid, and subjected to the isomerization reaction at 75–100° C. Optionally the acid is removed from the reaction mixture, and the obtained reaction mixture after optionally removing the acid is preferably reused as a part of a raw material in a new batch reaction. The preparation of the before strong acidic medium is preferably carried out by using concentrated hydrochloric acid.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

REFST AVAILABLE COPY

[Translation done.]

---

\* NOTICES \*

JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] the inside of a strong acid nature medium -- beta-mercaptopropionic acid or mercaptoacetic acid -- a catalyst -- carrying out -- full -- me -- the approach of manufacturing a 9 and 9-bis(4-hydroxyphenyl) fluorene by carrying out the condensation reaction of the phenol to non -- setting -- a reaction -- a The condensation reaction in a 55-65-degree C temperature requirement, and b The above-mentioned approach characterized by carrying out in two phases of the isomerization in a 75-100-degree C temperature requirement.

[Claim 2] The approach according to claim 1 of using again the residue which remains after the after treatment of a reaction mixture as some raw materials in new reaction batch.

[Claim 3] The approach according to claim 1 of mixing with a catalyst and an acid the residue which remains after the after treatment of a reaction mixture, and giving to 75-100-degree C isomerization, and using [ after that ] it again as some raw materials in a new reaction batch after separation of an acid depending on the case.

[Claim 4] The approach of any one publication of claim 1-3 which uses concentrated hydrochloric acid in order to prepare a strong acid nature medium.

[Claim 5] The approach of any one publication of claim 1-4 which performs separation of the resultant from a reaction mixture by forming nitril and an addition product.

[Claim 6] The approach according to claim 5 of disassembling the addition product of a 9 and 9-screw-(4-hydroxyphenyl) fluorene and nitril with heat.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

#### [0001]

[Industrial Application] this invention -- a phenol and full -- me -- it is related with the approach of having been improved which manufactures the 9 and 9-screw-(4-hydroxyphenyl) fluorene called the fluorene bisphenol in the chemical industry by condensing non in a strong acid nature medium.

#### [0002]

[Description of the Prior Art] This kind of approach has been well-known since 1970 (U.S. Pat. No. 3,546,165 specification), and has improved repeatedly. Especially the improvement was a thing about the selection of contact conditions which carries out a condensation reaction to separation and the purification list of a resultant. In the case of the most excellent approach indicated by the European Patent application public presentation No. 0,502,252 specification and the 0,502,253 specification, a strong acid nature medium is formed of installation of HCl-gas, and formation of an addition product with a polyalkylene glycol or nitril is separating the resultant into it.

[0003] the full the approach mentioned to --, i.e., the last, by all well-known approaches is also used in the case of -- and a condensation reaction -- me -- criteria [ non ] -- carrying out -- 20% up to -- o and p-isomer and a trimer arise especially, this remains as residue after the after treatment of a reaction mixture, and there are a by-product and a fault that abandonment processing of this must be carried out.

#### [0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] So, the technical problem of this invention is offering how generation of a non-wanted by-product is the minimum.

#### [0005]

[Means for Solving the Problem] This technical problem is solved by the approach according to claim 1 to 6. A condensation reaction is performed in a 30-100-degree C temperature requirement, and according to the general principle, a reaction rate is proportional to the rise of temperature in that case. It increases very notably [ generation of a non-wanted by-product ] with the rise of reaction temperature. It is confirmed that the optimal range for attaining the minimum generation of an economical reaction rate and a by-product is a 55-65-degree C temperature requirement.

[0006] this invention person found out generating, when isomerization raises the temperature of a reaction mixture to 75-100 degrees C, after performing the condensation reaction. It turned out that isomerization to 9 of a request and a 9-bis(4-hydroxyphenyl) fluorene is performed to a surprising thing also advantageous in that case. [ by-product ] This knowledge is two step:a about this well-known reaction. It is the condensation reaction b in a 60-degree C temperature requirement especially 55-65 degrees C. It is applicable to all the well-known methods of manufacturing the fluorene bisphenol performed by the isomerization in a 75-100-degree C temperature requirement.

[0007] the after treatment of a reaction mixture -- the very thing -- it carries out by the well-known approach. It is advantageous that formation of an addition product with nitril or a polyalkylene glycol especially performs after treatment. The residue which remains after the after treatment of a reaction mixture can be again used as some raw materials in new reaction batch. The yield of a consecutive reaction batch improves by this. Though regrettable, this is unrepeatable to arbitration. because -- for example, it is because it increases to a large quantity after the third reaction batch with which it is alike with a batch, respectively and the residue of a front batch is used so that the by-product which is not isomerized must carry out sink appearance Perilla frutescens (L.) Britton var. crispa (Thunb.) Decne. of this residue and must carry out waste treatment.

[0008] However, by mixing with a catalyst and an acid the residue which remains after each after treatment of a reaction mixture, and giving 75-100-degree C another isomerization, to it, such loss of an expensive raw material can also be avoided, when it is again used as some raw materials in new reaction batch after separation of an acid after that for a surprising thing depending on the case. Such a cyclic process is a prerequisite which raises yield further, and can be repeated 10 times or more. The strange method of this

approach is also applicable to all the well-known processes of a fluorene bisphenol in principle. however, full -- me -- it is used especially advantageous in the case of a well-known approach from the European Patent application public presentation No. 0,502,252 specification which shifts to a strong acid sexual response medium, and a 0,502,253 specification by introducing a phenol first by the mole ratio of 1:4-1:8 as non, and \*\* (ing) by making it react to the bottom of the contact catalysis of mercaptopropionic acid or mercaptoacetic acid, and introducing HCl=gas. Another essential improvement was also found out as compared with this approach. That is, although there was an idea of saying that the acid or acidic component for preparation of a strong acid sexual response medium must be the water affinity matter of \*\*\*\*\* in it in order to combine the former with the reaction water produced in the case of a condensation reaction, this invention person found out that concentrated hydrochloric acid could also be used. This has the advantage of essentially improving method engineering from an above-mentioned approach as compared with installation of well-known HCl-gas. Furthermore, reaction time is remarkably shortened by this in 2 - 3 hours (at 60 degrees C).

[0009]

[Example]

the full of 190g of examples (0.5 mols) -- me -- non (99% concentration) is first introduced together with a 285g (three mols) phenol, and it heats at 60 degrees C, and transparent melt is produced. 1g It adds to melt and, subsequently 2 hours drops a 23ml hydrochloric acid (37% concentration) into the bottom of stirring of 3-mercaptopropionic acid (exothermic reaction). It is made to back-react at the temperature of 60 degrees C over 1 hour, and a reaction mixture is heated at 80 degrees C under stirring after that. 52g which consists of reaction water, a hydrochloric acid, and some phenols after that Azeotropic distillation of the liquid is carried out with the distillation temperature of 40-80 degrees C by the pressure of whenever [ 80-110-degree C bath temperature ], and 14 - 18 mm/Hg. A reaction mixture is cooled at 70 degrees C, and the acetonitrile which dissolves bottoms is added. If it cools, the addition product of a fluorene bisphenol and an acetonitrile will precipitate and a suspended solid will be cooled at 20 degrees C under stirring. The precipitating addition product is filtered out and a room temperature washes in batch (3 - 4 times) in an acetonitrile..:yield of 124g (= used full me 70.9% on the basis of non) which disassembles into the bottom of reduced pressure the addition product which became wet with the acetonitrile at 130 degrees C, and dries an isolation fluorene bisphenol, and 98.4% of purity. An acetonitrile is completely distilled out of a mother liquor by ordinary pressure, and bottoms (it consists of a phenol, a fluorene bisphenol, and a by-product) are returned to Isomerization I.

[0010] Example 2 examples 1-218g Bottoms are fused and it heats in temperature of 100 degrees C. It adds under stirring of 0.3ml 3-mercaptopropionic acid at melt, and then a 8ml hydrochloric acid (37% concentration) is dropped for 0.5 hours. A reaction mixture is made to back-react over 7.5 hours at the temperature of 100 degrees C. A 28ml liquid (it consists of reaction water, a hydrochloric acid, and some phenols) is distilled off in azeotropy under \*\* of 14 - 18 mm/Hg after that with whenever [ 80-110-degree C bath temperature ], and the distillation temperature of 40-80 degrees C. 195g used in immediately following reaction batch which manufactures a fluorene bisphenol The isomerization object I remains in bottoms.

[0011]

Progress of isomerization: Reaction time (at the time) Fluorene bisphenol o, p-isomer (%) trimer (%) ----- 0 55.1 21.0 22.3 2 76.9 15.5 6.3 4 82.8 12.6 3.3 6 84.7 10.7 4.0 8 85.7 9.5 3.3

example 3 example 1 -- the same -- 90g full -- me -- non and 188g A phenol and examples 2-195g The isomerization object I is made to react. Yield of 156g (= 89.2%), and 98.9% of purity. 235g which consists of the following components as bottoms (residue II) A :161g (1.7 mols) phenol and 74g from which mixture is obtained Product mixture: 53.9% A fluorene bisphenol and 19.8% o, p-isomer, and 24.4% Trimer.

[0012] They are the examples 3-235g as well as example 4 example 2. Bottoms (residue II) are isomerized. 223g The isomerization object II remains.

example 5 example 1 -- the same -- 90g full -- me -- non and 142g A phenol and examples 4-223g The isomerization object II is made to react. Yield of 168g (= 96.0%) of a fluorene bisphenol, and 98.7% of purity. 241g which consists of the following components as bottoms (residue III) A :160g (1.7 mols) phenol and 81g from which mixture is obtained Product mixture: 45.4% A fluorene bisphenol and 20.1% o, p-isomer, and 29.8% Trimer.

[0013] They are the examples 5-241g as well as example 6 example 2. Bottoms (residue III) are isomerized. 184g Isomerization object III It remains.

example 7 example 1 -- the same -- 90g full -- me -- non and 142g A phenol and examples 6-184g Isomerization object III It is made to react. Yield of 178g (= used full me 98.2% on the basis of non) of a fluorene bisphenol, and 98.2% of purity. bottoms (residue IV) \*\*\*\*\* -- 185g which consists of the following components The :107g (1.1 mols) phenol with which mixture is obtained, and 78g product mixture: -- 42.4% A fluorene bisphenol and 23.2% o, p-isomer, and 37.3% Trimer.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-253437

(43)公開日 平成8年(1996)10月1日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>  
C 07 C 39/17  
37/20  
37/86

識別記号  
9155-4H

F I  
C 07 C 39/17  
37/20  
37/86

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全4頁)

(21)出願番号 特願平8-32223  
(22)出願日 平成8年(1996)2月20日  
(31)優先権主張番号 195060555:5  
(32)優先日 1995年2月22日  
(33)優先権主張国 ドイツ (DE)

(71)出願人 596023050  
ヴァイル・ゲゼルシャフト・ミト・ベシユ  
レンクトル・ハフツング  
ドイツ連邦共和国、68305 マンハイム、  
ザントホーフナー・ストラーゼ、96  
(72)発明者 ブルノー・ビーデンバッハ  
ドイツ連邦共和国、67547 ウオルムス、  
レルヒエンウエーク、4ペー  
(72)発明者 ウインフリー・オルト  
ドイツ連邦共和国、67454 ハッスロッホ、  
アム・ザッハテルグラーベン、28  
(74)代理人 弁理士 江崎 光史 (外3名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】フルオレンビスフェノールの製造方法

(57)【要約】

【課題】強酸性媒体中で $\beta$ -メルカブトプロピオン酸またはメルカブト酢酸を触媒としてフルオレノンとフェノールとを縮合反応させることによって9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを製造する、不所望の副生成物の生成を最小限にする方法の提供。

【解決手段】反応を

- 55~65°Cの温度範囲内の縮合反応、
- 75~100°Cの温度範囲内の異性化反応の二つの段階で行う。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 強酸性媒体中で $\beta$ -メルカブトプロピオニ酸またはメルカブト酢酸を触媒としてフルオレノンとフェノールとを縮合反応させることによって9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを製造する方法において、反応を

- a) 55~65°Cの温度範囲内での縮合反応、
- b) 75~100°Cの温度範囲内での異性化反応の二つの段階で行うことと特徴とする、上記方法。

【請求項2】 反応混合物の後処理の後に残留する残渣を新たな反応バッチで原料の一部として再び使用する、請求項1に記載の方法。

【請求項3】 反応混合物の後処理の後に残留する残渣を触媒および酸と混合し、75~100°Cでの異性化反応に付しそしてその後に場合によっては酸の分離後に新たな反応バッチにおいて原料の一部として再び使用する、請求項1に記載の方法。

【請求項4】 強酸性媒体を調製するために濃塩酸を使用する請求項1~3のいずれか一つに記載の方法。

【請求項5】 反応混合物からの反応生成物の分離をニトリルと付加物を形成することによって行う請求項1~4のいずれか一つに記載の方法。

【請求項6】 9, 9-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンとニトリルとの付加生成物の分解を熱によって行う請求項5に記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、フェノールとフルオレンとを強酸性媒体中で縮合することによって、化学工業においてフルオレンビスフェノールとも称されている9, 9-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンを製造する改善された方法に関する。

## 【0002】

【従来技術】この種の方法は1970年以来公知であり(米国特許第3, 546, 165号明細書)、かつ何度も改善してきた。その改善は特に反応生成物の分離および精製並びに縮合反応させる接触条件の選択に関するものであった。ヨーロッパ特許出願公開第0, 502, 252号明細書および同第0, 502, 253号明細書に記載されている最も優れた方法の場合には、強酸性媒体がHClガスの導入によって形成されそして反応生成物の分離をポリアルキレングリコールまたはニトリルとの付加物の形成によって行っている。

【0003】全ての公知の方法では一一即ち最後に挙げた方法も一一、縮合反応の際に、使用されるフルオレンを基準として20%まで副生成物、殊にo, p-異性体および三量体が生じ、これが反応混合物の後処理の後に残渣として残留しそしてこれを廃棄処理しなければならないという欠点がある。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】それ故に本発明の課題は不所望の副生成物の生成が最小限である方法を提供することである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】この課題は請求項1~6に記載の方法によって解決される。縮合反応は30~100°Cの温度範囲内で行い、その際に一般的原則によれば反応速度は温度の上昇に比例する。反応温度の上昇と共に不所望の副生成物の生成も非常に顕著に増加する。経済的な反応速度および副生成物の最小限の生成を達成するための最適な範囲は55~65°Cの温度範囲であることが確かめられている。

【0006】本発明者は、縮合反応を行った後に異性化反応が、反応混合物の温度を75~100°Cに高めた時に発生することを見出した。驚くべきことに、その際に有利にも、副生成物から所望の9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンへの異性化が行われることがわかった。この知見は、この公知の反応を二段階:

a) 55~65°C、特に60°Cの温度範囲内での縮合反応

b) 75~100°Cの温度範囲内での異性化反応で行うフルオレンビスフェノールを製造する公知のあらゆる方法に適用できる。

【0007】反応混合物の後処理は自体公知の方法で行う。後処理をニトリルまたはポリアルキレングリコールとの付加物の形成によって行うのが特に有利である。反応混合物の後処理の後に残留する残渣は新しい反応バッチで原料の一部として再び使用することができる。これによって後続の反応バッチの収率が向上する。残念ながらこれを任意に繰り返すことができない。何故ならば例えば、それぞれに前のバッチの残渣が使用されている第三の反応バッチの後では異性化されていない副生成物が、この残渣を流し出しそして廃棄物処理しなければならない程多量に増加してしまうからである。

【0008】しかしながら驚くべきことに、高価な原料のこのような損失も、反応混合物のそれぞれの後処理の後に残留する残渣を触媒および酸と混合し、75~100°Cの別の異性化反応に付しそしてその後に場合によっては酸の分離後に新しい反応バッチで原料の一部として再び使用した場合に、避けることができる。この様な循環法は更に収量を向上させる前提条件であり、10回以上繰り返すことができる。この方法の変法も原則としてフルオレンビスフェノールの公知のあらゆる製法に適用することができる。しかしフルオレンとフェノールとを1:4~1:8のモル比で最初に導入し、メルカブトプロピオニ酸またはメルカブト酢酸の接触作用下に反応させそぞしてHClガスを導入することによって強酸性反応媒体に移行されるヨーロッパ特許出願公開第0, 502, 252号明細書および同第0, 502, 253号明細書から公知の方法の場合に特に有利に使用さ

れる。この方法に比較して別の本質的な改善も見出された。即ち、従来には、縮合反応の際に生ずる反応水と結合させるために、強酸性反応媒体の調製用の酸または酸性成分が水不含の水結合性物質でなければならないという考えがあったが、本発明者は濃塩酸も使用できることを見出した。このことは上述の方法から公知のHC1ガスの導入に比較して、方法技術を本質的に改善するという長所を有している。更に、これによって反応時間が(60°Cで)2~3時間に著しく短縮される。

【0009】

## 【実施例】

実施例1

90g(0.5モル)のフルオレノン(99%濃度)を285g(3モル)のフェノールと一緒に最初に導入して60°Cに加熱して透明な溶融物を生ずる。1gの3-メルカブトプロピオン酸を攪拌下に溶融物に添加し、次いで23mlの塩酸(37%濃度)を2時間の間に滴加する(発熱反応)。1時間にわたって60°Cの温度で後反応させそしてその後に反応混合物を攪拌下に80°Cに加熱する。その後に反応水、塩酸および一部のフェノールより成る52gの液体を80~110°Cの浴温度および40~18mm/Hgの圧力で40~80°Cの蒸留温度で共沸蒸留する。反応混合物を70°Cに冷し、蒸留残渣を溶解するアセトニトリルを添加する。冷却す\*

## 異性化の経過:

反応時間(時)	フルオレンビスフェノール	<i>o,p</i> -異性体(%)	三量体(%)
0	55.1	21.0	22.3
2	76.9	15.5	6.3
4	82.8	12.6	3.3
6	84.7	10.7	4.0
8	85.7	9.5	3.3

実施例3

実施例1と同様に90gのフルオレノン、188gのフェノールおよび実施例2からの195gの異性化物Iを反応させる。収量156g(=89.2%)、純度98.9%。蒸留残渣(残渣II)として以下の成分より成る235gの混合物が得られる: 161g(1.7モル)のフェノール、

74gの生成物混合物: 53.9%のフルオレンビスフェノール、19.8%の*o,p*-異性体、24.4%の三量体。

【0012】実施例4

実施例2と同様に、実施例3からの235gの蒸留残渣(残渣II)を異性化する。223gの異性化物IIが残留する。

実施例5

実施例1と同様に90gのフルオレノン、142gのフェノールおよび実施例4からの223gの異性化物IIを反応させる。フルオレンビスフェノールの収量168g

\*るとフルオレンビスフェノールとアセトニトリルとの付加物が沈殿し、懸濁物を攪拌下に20°Cに冷やす。沈殿する付加物を濾去しそして室温でアセトニトリルにて回分的に(3~4回)洗浄する。アセトニトリルで湿った付加物を130°Cで減圧下に分解しそして遊離フルオレンビスフェノールを乾燥する: 収量124g(=使用したフルオレノンを基準として70.9%)、純度98.4%。母液からアセトニトリルを常圧で完全に留去しそして蒸留残渣(フェノール、フルオレンビスフェノールおよび副生成物より成る)を異性化反応Iに戻す。

【0010】実施例2

実施例1からの218gの蒸留残渣を溶融しそして100°Cの温度に加熱する。0.3mlの3-メルカブトブロビオン酸を攪拌下に溶融物に添加しそして次に8mlの塩酸(37%濃度)を0.5時間滴加する。反応混合物を100°Cの温度で7.5時間にわたって後反応させる。その後に28mlの液体(反応水、塩酸および一部のフェノールより成る)を80~110°Cの浴温度および40~80°Cの蒸留温度で14~18mm/Hgの圧のものとて共沸的に留去する。フルオレンビスフェノールを製造する直ぐ次の反応バッチで使用される195gの異性化物Iが蒸留残渣中に残留している。

## 【0011】

40 実施例1からの218gの蒸留残渣を溶融しそして100°Cの温度に加熱する。0.3mlの3-メルカブトブロビオン酸を攪拌下に溶融物に添加しそして次に8mlの塩酸(37%濃度)を0.5時間滴加する。反応混合物を100°Cの温度で7.5時間にわたって後反応させる。その後に28mlの液体(反応水、塩酸および一部のフェノールより成る)を80~110°Cの浴温度および40~80°Cの蒸留温度で14~18mm/Hgの圧のものとて共沸的に留去する。フルオレンビスフェノールを製造する直ぐ次の反応バッチで使用される195gの異性化物Iが蒸留残渣中に残留している。

## 【0011】

(=96.0%)、純度98.7%。蒸留残渣(残渣II)として以下の成分より成る241gの混合物が得られる: 160g(1.7モル)のフェノール、81gの生成物混合物: 45.4%のフルオレンビスフェノール、20.1%の*o,p*-異性体、29.8%の三量体。

【0013】実施例6

40 実施例2と同様に、実施例5からの241gの蒸留残渣(残渣III)を異性化する。184gの異性化物IIIが残留する。

実施例7

実施例1と同様に90gのフルオレノン、142gのフェノールおよび実施例6からの184gの異性化物IIIを反応させる。フルオレンビスフェノールの収量178g(=使用したフルオレノンを基準として98.2%)、純度98.2%。蒸留残渣(残渣IV)として以下の成分より成る185gの混合物が得られる: 107g(1.1モル)のフェノール、

78gの生成物混合物：42.4%のフルオレンビズフ  
エノール、23.2%のo,p-異性体、37.3%の三量\*

フロントページの続き

(72)発明者 ヴォルフガング・ヴァイクス  
ドイツ連邦共和国、68535 エディンゲン  
— ネッカーハウゼン、ケルテルウエー  
ク、3

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record

## BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT OR DRAWING
- BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- GRAY SCALE DOCUMENTS
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**  
**As rescanning documents *will not* correct images problems checked, please do not report the problems to the IFW Image Problem Mailbox**